

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

10.3.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

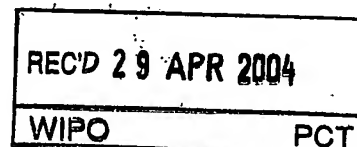
This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日  
Date of Application: 2003年 3月12日

出願番号  
Application Number: 特願2003-065900

[ST. 10/C]: [J.P. 2003-065900]

出願人  
Applicant(s): 住友特殊金属株式会社

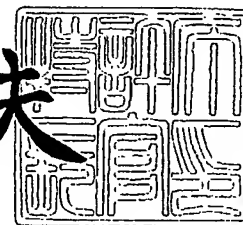


PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年 4月14日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康夫



BEST AVAILABLE COPY

出証番号 出証特2004-3031088

【書類名】 特許願

【整理番号】 SS03066A

【提出日】 平成15年 3月12日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01F 1/053  
C22C 38/00

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号 住友特殊  
金属株式会社 山崎製作所内

【氏名】 富澤 浩之

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号 住友特殊  
金属株式会社 山崎製作所内

【氏名】 松浦 裕

【特許出願人】

【識別番号】 000183417

【氏名又は名称】 住友特殊金属株式会社

【代理人】

【識別番号】 100101683

【弁理士】

【氏名又は名称】 奥田 誠司

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 082969

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9908800

【プルーフの要否】

要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 R-T-B系焼結磁石およびその製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項1】 R: 27.0質量%以上32.0質量%以下 (Rは、Nd、Pr、Dy、Tbのうち少なくとも1種であり、NdまたはPrのいずれかが必ず含まれる)、

T: 63.0質量%以上72.5質量%以下 (Tは、Feを必ず含み、Tの50%以下をCoで置換できる)、

Ga: 0.01質量%以上0.08質量%以下、および

B: 0.85質量%以上0.98質量%以下

の組成を有するR-T-B系焼結磁石。

【請求項2】 前記Bの一部がC (炭素) によって置換されており、置換したCをBで換算した量と置換されていないBの量の合計が0.85質量%以上0.98質量%以下の範囲内にある請求項1に記載のR-T-B系焼結磁石。

【請求項3】 M: 2.0質量%以下 (Mは、Al、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Zn、Zr、Nb、Mo、In、Sn、Hf、Ta、Wからなる群から選択された少なくとも1種) を含有する請求項1または2に記載のR-T-B系焼結磁石。

【請求項4】 正方晶 $R_2T_{14}B$ 型結晶構造を有する主相が磁石体積の90%以上を占め、かつ $R_{1.1}Fe_4B_4$ 相を実質的に含まない請求項1から3のいずれかに記載のR-T-B系焼結磁石。

【請求項5】 酸素濃度は0.5質量%以下であり、窒素濃度は0.2質量%以下であり、水素濃度は0.01質量%以下である請求項1から3のいずれかに記載のR-T-B系焼結磁石。

【請求項6】 R: 27.0質量%以上32.0質量%以下 (Rは、Nd、Pr、Dy、Tbのうち少なくとも1種であり、NdまたはPrのいずれかが必ず含まれる)、T: 63.0質量%以上72.5質量%以下 (Tは、Feを必ず含み、Tの50%以下をCoで置換できる)、Ga: 0.01質量%以上0.08質量%以下、およびB: 0.85質量%以上0.98質量%以下の組成を有する

合金の粉末を用意する工程と、

前記合金の粉末を成形し、焼結して焼結磁石を作製する工程と、

前記焼結磁石に対して、 $400^{\circ}\text{C}\sim 600^{\circ}\text{C}$ の熱処理を施す工程と、  
を含む R-T-B 系焼結磁石の製造方法。

【請求項 7】 前記合金の粉末を用意する工程は、

前記合金の溶湯を用意する工程と、

前記合金の溶湯をストリップキャスト法によって急冷し、凝固させることによ  
って急冷合金を作製する工程と、

前記急冷合金を粉砕する工程と、

を含む請求項 6 に記載の R-T-B 系焼結磁石の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、R-T-B 系焼結磁石およびその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

高性能永久磁石として代表的な R-T-B 系永久磁石は、優れた磁気特性を有  
することから、各種モータ、アクチュエータなど様々な用途に使用されている。  
しかし、電気、電子機器の小型化・軽量化さらには高機能化のため、さらなる磁  
気特性の向上、耐食性の向上、コストダウンなどが要求されている。

【0003】

R-T-B 系永久磁石において、残留磁束密度を決定する因子は、主相の存在  
比率とその配向度である。主相存在比を高めるためには、組成を  $\text{R}_2\text{T}_{14}\text{B}$  化合  
物の化学量論比に近づければよいが、特に B を減少させることは現実には困難で  
ある。生産上、B が化学量論比を下回ると、保磁力を担う粒界相に軟磁性の  $\text{R}_2\text{Fe}_{17}$   
相が析出し、保磁力が大幅に低下してしまう。このため、B 濃度は化学量  
論比よりも僅かに高い値をターゲット値に設定する必要がある。

【0004】

このため、従来は、どうしても粒界に B リッチ相 ( $\text{Nd}_{1.1}\text{Fe}_4\text{B}_4$ ) の析出

した組織が形成されてしまう。Bリッチ相は、磁石特性には何ら関与せず、その比率が大きくなると、残留磁束密度 $B_r$ が低下してしまうことになる。また、微量のBを検知することは困難であり、分析精度の誤差はB含有量に対してプラスマイナス2%程度になる。このため、化学量論比よりも過剰なBを添加せざるを得ず、B濃度低減によって磁石特性を更に向上させることはできなかった。

#### 【0005】

一方、R-T-B系永久磁石に種々の元素を添加して磁気特性の向上を図る提案が数多くなされている。それらの添加元素のうち、Gaは、R-T-B系焼結磁石や、R-T-B系ボンド磁石、特にHDDR法による異方性ボンド磁石に添加されている。Ga添加の目的は、焼結磁石では保磁力向上にあり、ボンド磁石では、再結晶工程における保磁力向上および異方性保持にある。

#### 【0006】

特許文献1は、R-T-B系焼結磁石へ0.2~13質量%のGaを添加することによって高い保磁力が得られることを開示している。特許文献2は、0.087~14.4質量%のGaとともにNb、W、V、Ta、Moのうち少なくとも1種を添加することによって高い保磁力が得られることを開示している。これらの文献に開示されている従来技術は、比較的多量のGaを添加することによって保磁力を向上させることを目的としている。

#### 【0007】

特許文献3は、 $R(Fe_{1-x-y-z-u}Co_xB_yGa_zM_u)_A$ 組成において、 $0 < z \leq 0.15$ という広い範囲のGaを添加することが開示している。特許文献3では、0.087質量%以上( $z=0.001$ )のGaを添加することによって効果が認められると記載されている。

#### 【0008】

特許文献4は、O(酸素)濃度が0.3~0.7質量%の範囲において、0.01~0.5質量%のGaを添加することを開示しているが、実施例におけるGa添加量は0.09質量%以上である。特許文献5は、O(酸素)濃度が0.25質量%以下において、0.01~0.5質量%のGaを添加することを開示しているが、実施例におけるGa添加量は0.08質量%以上である。

## 【0009】

特許文献6および特許文献7は、濃度0.9～1.3質量%のBと濃度0.02～0.5質量%のGaを同時に添加することが開示されているが、Vの添加が必須であり、また、B濃度が1.0質量%未満の実施例は記載されていない。

## 【0010】

特許文献8は、7at%以下の種々添加元素が記載され、その中にGaも含まれているが、磁石構成相にNdリッチ相と共にBリッチ相を必須とする。

## 【0011】

特許文献9は、0.05～1質量%のGaを添加することを開示しているが、Nbを必須元素として含有させている。

## 【0012】

特許文献10は、いわゆるHDDR法を用いて焼結磁石を製造する方法を開示している。0～4at%のGa添加が開示されている。しかし、水素化反応を用いるHDDR処理におけるGaの働きは、焼結磁石では発現しない。

## 【0013】

特許文献11は、異なる2種の組成の合金原料を混合して用いる2合金法に関する発明が開示している。両方の合金または一方の合金には0.01～0.5質量%のGaとAlとを複合添加することが記載されているが、0.1質量%のGaを添加する実施例しか開示されていない。

## 【0014】

## 【特許文献1】

特許第2577373号公報

## 【特許文献2】

特許第2751109号公報

## 【特許文献3】

特許第3255593号公報

## 【特許文献4】

特許第3255344号公報

## 【特許文献5】

特許第 2966342 号公報

【特許文献 6】

特許第 3298221 号公報

【特許文献 7】

特許第 3298219 号公報

【特許文献 8】

特許第 3296507 号公報

【特許文献 9】

特許第 3080275 号公報

【特許文献 10】

特許第 2904571 号公報

【特許文献 11】

特開 2002-38245 号公報

【0015】

【発明が解決しようとする課題】

上記の従来技術では、何れの場合も、比較的量の多い G a を添加するか、あるいは、G a と他の添加元素とを複合添加することによって保磁力を向上させている。しかし、B 濃度を減少させて主相の存在比率を高めることにより、残留磁束密度  $B_r$  を向上させることについては、教示も示唆もされていない。

【0016】

本発明はかかる諸点に鑑みてなされたものであり、本発明の目的は、B-r i c h 相 ( $R_{1.1}Fe_4B_4$ ) の存在比率を低減し、主相の存在比率を高めることにより、残留磁束密度  $B_r$  を向上させた R-T-B 系焼結磁石を提供することにある。

【0017】

【課題を解決するための手段】

本発明の R-T-B 系焼結磁石は、R: 27.0 質量%以上 32.0 質量%以下 (R は、Nd、Pr、Dy、Tb のうち少なくとも 1 種であり、Nd または Pr のいずれかが必ず含まれる)、T: 63.0 質量%以上 72.5 質量%以下 (



Tは、Feを必ず含み、Tの50%以下をCoで置換できる)、Ga:0.01質量%以上0.08質量%以下、およびB:0.85質量%以上0.98質量%以下の組成を有している。

#### 【0018】

好ましい実施形態においては、前記Bの一部がC（炭素）によって置換されており、置換したCをBで換算した量と置換されていないBの量の合計が0.85質量%以上0.98質量%以下の範囲内にある。

#### 【0019】

好ましい実施形態においては、M:2.0質量%以下（Mは、Al、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Zn、Zr、Nb、Mo、In、Sn、Hf、Ta、Wからなる群から選択された少なくとも1種）を含有する。

#### 【0020】

好ましい実施形態においては、正方晶 $R_2T_{14}B$ 型結晶構造を有する主相が磁石体積の90%以上を占め、かつ $R_{1.1}Fe_4B_4$ 相を実質的に含まない。

#### 【0021】

好ましい実施形態において、酸素濃度は0.5質量%以下であり、窒素濃度は0.2質量%以下であり、水素濃度は0.01質量%以下である。

#### 【0022】

本発明のR-T-B系焼結磁石の製造方法は、R:27.0質量%以上32.0質量%以下（Rは、Nd、Pr、Dy、Tbのうち少なくとも1種であり、NdまたはPrのいずれかが必ず含まれる）、T:63.0質量%以上72.5質量%以下（Tは、Feを必ず含み、Tの50%以下をCoで置換できる）、Ga:0.01質量%以上0.08質量%以下、およびB:0.85質量%以上0.98質量%以下の組成を有する合金の粉末を用意する工程と、前記合金の粉末を成形し、焼結して焼結磁石を作製する工程と、前記焼結磁石に対して、400℃～600℃の熱処理を施す工程とを含む。

#### 【0023】

好ましい実施形態において、前記合金の粉末を用意する工程は、前記合金の溶湯を用意する工程と、前記合金の溶湯をストリップキャスト法によって急冷し、

凝固させることによって急冷合金を作製する工程と、前記急冷合金を粉碎する工程とを含む。

#### 【0024】

##### 【発明の実施の形態】

本発明者は、0.01質量%以上0.08質量%以下という極微量のGaを添加することにより、B濃度を0.85質量%以上0.98質量%以下の範囲内の従来よりも低い値に設定して粒界相におけるBリッチ相(Nd<sub>1.1</sub>Fe<sub>4</sub>B<sub>4</sub>)の生成を抑制しながら、軟磁性R<sub>2</sub>Fe<sub>17</sub>相の生成をも抑制できることを見いだし、本発明を想到するに至った。

#### 【0025】

本発明では、Gaの微量添加により、粒界相におけるBリッチ相および軟磁性R<sub>2</sub>Fe<sub>17</sub>相の生成が抑制される結果、B濃度が比較的低い場合でも、保磁力の低下を招かずに優れた磁石特性を発現させることが可能になる。このようなGaの微量添加によって得られる効果は、従来は全く知られていなかったものである。前述した先行技術文献に開示されているGaの添加は、B濃度が1.0質量%を超える範囲で保磁力を増大させることなどを目的して行われているが、B濃度が0.98質量%以下において生じていた保磁力低下を抑制する働きがGaの微量添加によってもたらされることは、本願発明者によって初めて明らかになったことである。

#### 【0026】

本発明によれば、B濃度を低く設定しても、保磁力が変動しにくく、Bの過剰添加が必要なくなるため、主相の存在比率が増加し、残留磁束密度B<sub>r</sub>を向上する。Bリッチ相の存在は、耐食性に悪い影響を示すことが知られているが、本発明の焼結磁石にはBリッチ相が実質的に存在しないため、耐食性が向上する。

#### 【0027】

また、本発明では、Bの過剰添加に伴う余分なRの添加も必要なくなるため、貴重な希土類元素Rの無駄な消費を避けることが可能となる。更に、反応性に富んだ希土類元素Rの濃度が低下すると、それによって焼結磁石の耐食性が更に向上するという利点もある。

## 【0028】

なお、本発明では、従来のGa添加と比べて低い濃度のGaしか添加しないため、高価なGaの使用量を低下させつつ、磁石特性向上効果を十分に得ることができる。

## 【0029】

軟磁性相の生成がGaの微量添加によって抑制される詳細なメカニズムは明らかになっていないが、後に詳細に説明する実験結果から、焼結後の熱処理が重要な役割を果たしていると考えられる。

## 【0030】

以下、本発明によるR-T-B系焼結磁石の好ましい実施形態を説明する。

## 【0031】

まず、R: 27.0質量%以上32.0質量%以下(Rは、Nd、Pr、Dy、Tbのうち少なくとも1種であり、NdまたはPrのいずれかが必ず含まれる)、T: 63.0質量%以上72.5質量%以下(Tは、Feを必ず含み、Tの50%以下をCoで置換できる)、Ga: 0.01質量%以上0.08質量%以下、およびB: 0.85質量%以上0.98質量%以下の組成を有する合金を作製する。具体的には、上記組成となるように原材料を溶解し、冷却・凝固して合金を作製する。

## 【0032】

上記合金の製造は、公知の一般的な方法を採用して行うことができる。各種の合金製造方法の中でも、ストリップキャスティング法が好適に用いられる。ストリップキャスティング法によれば、例えば板厚0.1mm～5mm程度の鋳片を得ることができる。得られた鋳片は、Rリッチ相が微細に分散し、主相であるR<sub>2</sub>T<sub>14</sub>B相の短軸寸法が0.1～50μm、長軸寸法が5μm～板厚程度の極微細な柱状組織を有している。このような柱状組織の存在により、高磁気特性を得ることができる。ストリップキャスティング法の代わりに、遠心鑄造法を採用しても良い。また、溶解・合金化の工程に代えて、直接還元拡散法を用いて上記組成の合金を作製しても良い。

## 【0033】

得られた合金を、公知の方法によって平均粒径  $1 \sim 10 \mu\text{m}$  に粗く粉碎される。このような合金の粉末は、粗粉碎工程と微粉碎工程の 2 種類の粉碎を行うことによって好適に作製され得る。粗粉碎は、水素吸蔵粉碎法や、ディスクミルなどを用いた機械的粉碎法によって行うことができる。また、微粉碎は、ジェットミル粉碎法、ボールミル、アトライターなどの機械的粉碎法によって行うことができる。

#### 【0034】

上記の粉碎によって得られた微粉碎粉は、公知の成形技術を用いて様々な形状に成形される。成形は、磁場中圧縮成形法を用いて行うことが一般的であるが、パルス配向した後静水圧成形やゴムモールド内で成形する方法を用いても良い。

#### 【0035】

成形時の給粉の能率、成形密度の均一化、成形時の離型性を向上させるために、脂肪酸エステルなどの液状潤滑剤やステアリン酸亜鉛などの固状潤滑剤を微粉碎前の粉末および／または微粉碎後の粉末に添加することが好ましい。添加量は、粉末 100 重量部に対して、0.01 重量部～5 重量部が好ましい。

#### 【0036】

成形後の成形体は、公知の方法によって焼結することができる。焼結温度は  $1000^{\circ}\text{C} \sim 1180^{\circ}\text{C}$ 、焼結時間は 1～6 時間程度が好ましい。焼結後の焼結体には、所定の熱処理を施す。この熱処理によって、この発明による G a の微量添加効果、B の削減効果がより一層顕著となる。熱処理条件は、温度  $400^{\circ}\text{C} \sim 600^{\circ}\text{C}$ 、時間 1～8 時間程度である。

#### 【0037】

##### [組成限定理由]

R は希土類焼結磁石の必須元素であって、Nd、Pr、Dy、Tb のうち少なくとも 1 種から選択され得る。ただし、R は、Nd または Pr のいずれか一方を必ず含むことが望ましい。更に好ましくは、Nd-Dy、Nd-Tb、Nd-Pr-Dy、または Nd-Pr-Tb で示される希土類元素の組合わせを用いる。

#### 【0038】

希土類元素のうち、DyやTbは、特に保磁力の向上に効果を発揮する。上記元素以外に少量のCeやLaなど他の希土類元素を含有してもよく、ミッシュメタルやジジムを用いることもできる。また、Rは純元素でなくてもよく、工業上入手可能な範囲で、製造上不可避な不純物を含有するものでも差し支えない。含有量は、27.0質量%未満では高磁気特性、特に高保磁力が得られず、32.0質量%を超えると残留磁束密度が低下するため、27.0質量%以上32.0質量%以下とする。

#### 【0039】

Tは、Feを必ず含み、その50%以下をCoで置換することができる。また、FeやCo以外の少量の遷移金属元素を含有することができる。Coは温度特性の向上、耐食性の向上に有効であり、通常は、10質量%以下のCoおよび残部Feの組合わせで用いる。含有量は、63.0質量%未満では残留磁束密度が低下し、72.5質量%を超えると保磁力の低下を来たすので、63.0質量%以上72.5質量%以下とする。

#### 【0040】

Gaは本発明の必須元素である。従来、Gaは主として保磁力向上を目的として比較的多量に(0.08質量%以上)添加されていたが、本発明では、Gaの微量添加によってBを化学量論比に極めて近い領域まで低減しても、保磁力の低下が起らないという今まで予測されていなかった効果を発揮させている。

#### 【0041】

本発明では、Gaの含有量を0.01質量%以上0.08質量%以下に設定している。0.01質量%未満では上記の特徴を得ることができず、また、分析による管理が困難となる。0.08質量%を超えると、後述するように、残留磁束密度 $B_r$ の低下を招いてしまうため好ましくない。

#### 【0042】

本発明におけるGaは、単独の添加、すなわち、他の添加元素との複合添加なしでその効果を発揮することができる。但し、他の目的、例えば、さらなる保磁力向上を目的として後述するM元素などを添加することは差し支えない。

#### 【0043】

Bは必須元素であって、上記の通り、その含有量は、Gaが含有されることによって、化学量論比に極めて近い0.85質量%以上0.98質量%以下にすることができる。

#### 【0044】

Bが0.85質量%未満では軟磁性の $R_2Fe_{17}$ 相が析出し、保磁力が大幅に低下し、0.96質量%を超えるとB-rich相が増加し高い残留磁束密度を得ることができない。従って、本発明では、B濃度を0.85質量%以上0.98質量%以下の範囲内に設定する。特に好ましい範囲は0.90質量%以上0.96質量%以下である。このように、本発明によれば、B濃度を低減しているため、焼結磁石の構成相から実質的にB-rich相( $R_{1.1}Fe_4B_4$ )を無くし、主相の体積比率を高めることができる。その結果、保磁力の低下を招くことなく、焼結磁石の残留磁束密度を向上させることができる。

#### 【0045】

なお、Bの一部はCで置換することができる。C置換は磁石の耐食性を向上させることができ有効である。B+Cとした場合の含有量は、Cの置換原子数をBの原子数で換算し、上記のB濃度の範囲内に設定されることが好ましい。

#### 【0046】

M元素は、保磁力向上のために添加することができる。M元素は、Al、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Zn、Zr、Nb、Mo、In、Sn、Hf、Ta、Wのうち少なくとも1種である。添加量は2.0質量%以下が好ましい。2.0質量%を超えると残留磁束密度が低下するためである。

#### 【0047】

本発明では、上記元素以外に不可避免の不純物を許容することができる。例えば、Feから混入するMn、Crや、Fe-B（フェロボロン）から混入するAl、Si、Cuなどである。

#### 【0048】

上述した組成の合金を、後述する粉末冶金的手段を用いて焼結磁石を製造することにより、得られた焼結磁石における構成相は、正方晶 $R_2T_{14}B$ 型結晶構造を有する主相が磁石体積の90%以上を占め、かつ $R_{1.1}Fe_4B_4$ 相を実質的に

含まない構成相となる。

#### 【0 0 4 9】

また、得られた焼結磁石においては、酸素：0. 5 質量%以下、窒素：0. 2 質量%以下、水素：0. 0 1 質量%以下であることが好ましい。このように酸素、窒素、および水素濃度の上限を制限することにより、主相比率を高めることができ、残留磁束密度 $B_r$ を高めることができる。

#### 【0 0 5 0】

##### 【実施例】

##### （実施例 1）

Nd 3 1. 0 質量%、Co 1. 0 質量%、Ga 0. 0 2 質量%、B 0. 9 3 ~ 1. 0 2 質量%、Al 0. 2 質量%、Cu 0. 1 質量%、残部Feからなる組成の各元素を溶解し、ストリップキャスト法により、凝固させた。こうして得られたB量が異なるそれぞれの合金に対して、水素加圧による水素脆化法にて脆化後、真空中6 0 0 °C (8 7 3 K) で1時間保持し、冷却して原料粗粉を得た。この原料粗粉を、気流式粉碎器（日本ニューマチック製PJM）を用いて、窒素ガス雰囲気中で微粉碎した。何れの試料も、得られた微粉末の粒度はFSSSの測定で $3. 0 \pm 0. 1 \mu m$ であった。

#### 【0 0 5 1】

この微粉末を、0. 8 MA/mの磁界中、1 9 6 MPaの圧力で成型した。成形体のサイズは、1 5 mm×2 0 mm×2 0 mmであった。成型に際し、潤滑剤やバインダーは一切使用せず、また、磁界印可方向と加圧方向が直交する、直角磁界成型機を用いた。

#### 【0 0 5 2】

この成型体を、真空焼結炉を用い、8 0 0 °C (1 0 7 3 K) にて1時間保持した後、1 0 4 0 °C (1 3 1 3 K) にて2時間保持し、焼結した。この時の炉内雰囲気は、アルゴンガス(Ar)を導入しつつ真空排気する方法でAr分圧を3 0 0 Paに保持した。冷却は、炉内をArガスにて大気圧まで復圧し、Arを流気しつつ放冷する方法で行った。

#### 【0 0 5 3】

得られた焼結体を機械加工後、BHトレーサにて磁石特性を評価した後、Ar 雰囲気中で500℃(773 K)、1時間の熱処理を行い、再度機械加工し、BHトレーサにて磁石特性を評価した。

#### 【0054】

磁石特性を評価した後、各試料を350℃(623 K)にて1時間の熱処理を行って熱消磁した後、窒素雰囲気にて鋼製乳鉢で粉碎して分析試料とし、ICPによる成分分析、ガス分析装置による炭素、窒素、酸素分析、TDSによる水素分析を行った。以下のデータに示す組成は、全て焼結磁石そのものの分析値である。密度は、アルキメデス法による測定である。

#### 【0055】

得られた焼結体の残留磁束密度( $B_r$ )、保磁力( $H_{cj}$ )、焼結密度を図1に示す。また、前記焼結体に500℃で1時間の熱処理を施した後の磁気特性を同様に図1に示す。図1は、磁石特性のB濃度依存性を示すグラフである。グラフでは、0.02質量%のGaを添加した実施例、およびGaを添加していない比較例の各々についてのデータが示されている。図中の○プロットは、熱処理なし(焼結上がり: as-sintered)の場合の測定結果を示し、●プロットが熱処理有り(heat treated)の場合の測定結果を示している。

#### 【0056】

R量(Nd)一定の場合、B濃度の減少とともに $B_r$ は向上するが、本実施例(○:熱処理なし、●:熱処理後)では、B濃度が低い領域でも、特に熱処理後において保磁力の低下は認められない。特に、B濃度が0.98質量%以下の場合、熱処理を加えることによって保磁力が大きく改善することがわかる。

#### 【0057】

一方、比較例(△:熱処理なし、▲:熱処理後)では、B濃度が0.98質量%以下になると、保磁力が急激に低下している。この保磁力の低下は、熱処理によっても改善されない。

#### 【0058】

なお、いずれの試料についても、酸素:0.36-0.40質量%、窒素:0.004-0.015質量%、炭素:0.04-0.05質量%、水素:0.0



0.2 質量%以下であった。

#### 【0059】

##### (実施例 2)

図 2 は、R 量を 3.1 質量%、B 量を 0.94 質量%に固定し、Ga 量を変化させた場合の磁石特性と密度を示すグラフである。B 濃度 (0.94 質量%) は、図 1 のグラフからわかるように、Ga 添加効果が顕著に認められる組成範囲内に設定している。

#### 【0060】

本実施例における試料作製方法は、実施例 1 における試料作製方法と同じである。図 2 のグラフにおいて、○で示す熱処理なしの磁石特性によれば、Ga 添加によって保磁力  $H_{CJ}$  が向上することがわかる。また、●で示す熱処理後 (heat treated) の磁石特性によれば、極微量 (0.01 質量%) の Ga 添加でも、より効率的に保磁力  $H_{CJ}$  が向上することがわかる。

#### 【0061】

一方、残留磁束密度  $B_r$  は、Ga 濃度が 0.04 質量%付近でピークを示す。特に Ga 濃度が 0.08 質量%を超えると、残留磁束密度  $B_r$  は、焼結態の密度が向上するにもかかわらず、Ga 添加なしの場合における残留磁束密度  $B_r$  よりも低下してしまうことがわかる。

#### 【0062】

以上のことから、本発明のように B 濃度が低く設定される場合は、Ga 濃度を 0.08 質量%以下に設定する必要があることがわかる。従来のように Ga 濃度が 0.08 質量%を超えると、保磁力  $B_r$  の低下が生じるため好ましくない。

#### 【0063】

なお、本データのサンプルは、何れも酸素：0.38-0.44 質量%、窒素：0.004-0.012 質量%、炭素：0.03-0.05 質量%、水素：0.002 質量%以下であった。

#### 【0064】

##### (実施例 3)

実施例 1 で用いた試料につき、熱消磁後の磁石を機械的に加工、研磨し、金属

組織を観察した。図3は、 $31\text{Nd}-\text{bal. Fe}-1\text{Co}-0.2\text{Al}-0.1\text{Cu}-0.02\text{Ga}-0.93\text{B}$ の焼結磁石の金属組織を示す。図3における左の写真は反射電子線像を示し、右の写真はBの特性X線像を示している。この組成では、Bの集積点が認められず、実質的にB-rich相がないことがわかる。

#### 【0065】

(比較例)

実施例1で用いた試料につき、熱消磁後の磁石を機械的に加工、研磨し、金属組織を観察した。図4は、 $31\text{Nd}-\text{bal. Fe}-1\text{Co}-0.2\text{Al}-0.1\text{Cu}-0.02\text{Ga}-1.01\text{B}$ の焼結磁石の金属組織を示す。図4における左の写真は、反射電子線像を示し、右の写真は、Bの特性X線像を示している。図5からわかるように、Bの集積点が観察される。すなわち、Bが過剰の組成では、Gaを添加しても、B-rich相が生成される。

#### 【0066】

図5は、 $31\text{Nd}-\text{bal. Fe}-1\text{Co}-0.2\text{Al}-0.1\text{Cu}-0.94\text{B}$ の焼結磁石の金属組織を示す。図5の焼結磁石には、Gaが添加されておらず、その保磁力は図1のグラフに示すように低い。

#### 【0067】

また、Bの特性X線像からわかるように、B-rich相は観察されない。Nd-Fe-Bの3元状態図に従えば、強磁性の $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ 相が生成していると考えられる。Gaの添加が無く、かつ、B濃度が低い組成の焼結磁石において、保磁力が低下する原因は、この $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ 相が析出するためであると考えられる。

#### 【0068】

(実施例4)

本実施例は、実施例1と同様にして作製した試料において、希土類元素Rの一部を重希土類Dyで置換している。磁気特性のDy置換率依存性を図6に示す。図6から、B濃度が0.93質量%という低い値でも、Gaの添加により、大きな保磁力が得られることがわかる。

## 【0069】

## 【発明の効果】

本発明によれば、B濃度を低減しても、軟磁性相の生成を抑制しながら、実質的にB-rich相 ( $R_{1.1}Fe_4B_4$ ) を含まない高保磁力の焼結磁石を提供することができる。Bは、PRT法管理物質に指定されているため、Bの使用を削減できること自体がすぐれた効果をもたらす。

## 【0070】

また、本発明の組成によれば、熱処理後、B濃度に対する保磁力の変化（低下）が殆ど生じないため、B濃度に関する管理基準を緩和することができ、再現性良く高品質の焼結磁石を提供することが可能となる。

## 【0071】

本発明で使用するGaは高価な金属であるが、本発明によれば、従来に比べて極微量の添加で上記効果を得ることができるため、コストアップを生ずることがない。なお、B-rich相の消滅によって、必要なR量の削減も図れるため、それによってもコストダウンが可能である。更に、前述したように、B-rich相の消滅およびR量の削減によって耐食性が向上するという利点が得られる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【図1】

磁石特性のB濃度依存性を示すグラフである。グラフでは、0.02質量%のGaを添加した実施例、およびGaを添加していない比較例の各々についてのデータが示されている。

## 【図2】

磁石特性のGa濃度依存性を示すグラフである。

## 【図3】

$31Nd-bal.$ 、 $Fe-1Co-0.2Al-0.1Cu-0.02Ga-0.93B$ の焼結磁石の金属組織を示す写真である。左の写真は反射電子線像を示し、右の写真はBの特性X線像を示している。

## 【図4】

$31Nd-bal.$ 、 $Fe-1Co-0.2Al-0.1Cu-0.02Ga-$

1. 0 1 B の焼結磁石の金属組織を示す写真である。左の写真は、反射電子線像を示し、右の写真は、B の特性 X 線像を示している。

【図 5】

3 1 N d - b a 1 . F e - 1 C o - 0 . 2 A l - 0 . 1 C u - 0 . 9 4 B の焼結磁石の金属組織を示す。左の写真は、反射電子線像を示し、右の写真は、B の特性 X 線像を示している。

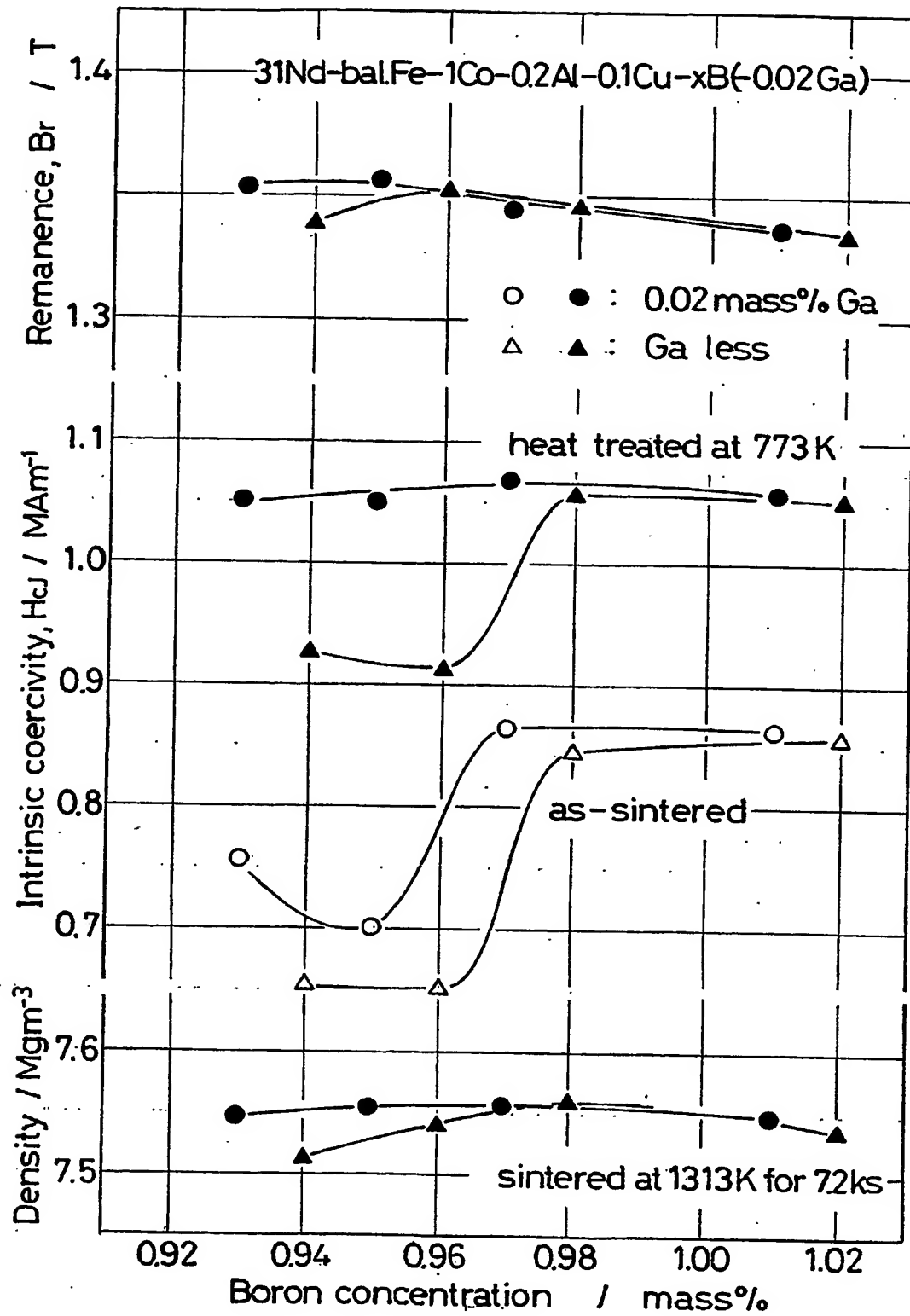
【図 6】

希土類元素 R の一部を重希土類 D y で置換した場合の磁気特性を示すグラフである。

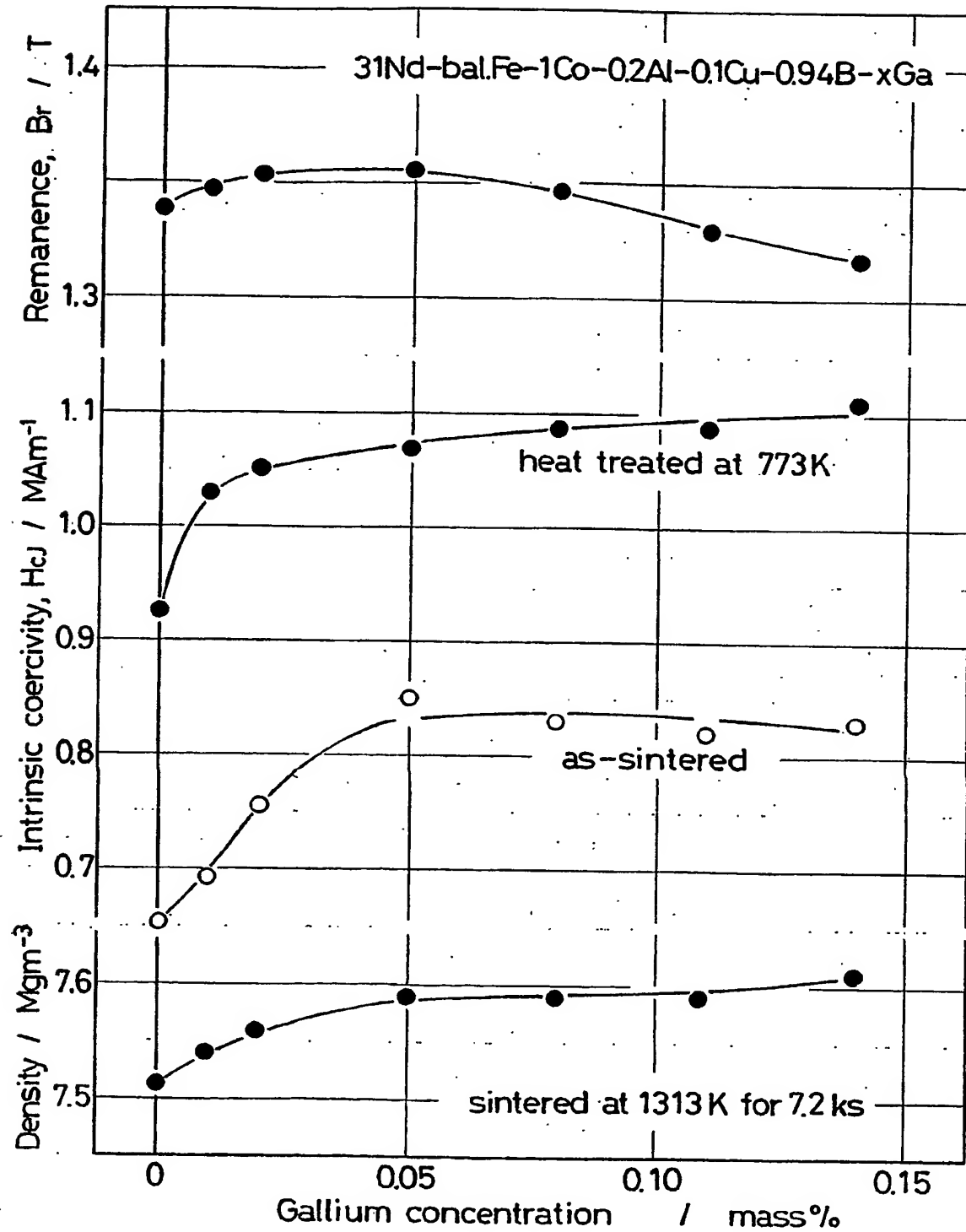
【書類名】

図面

【図 1】



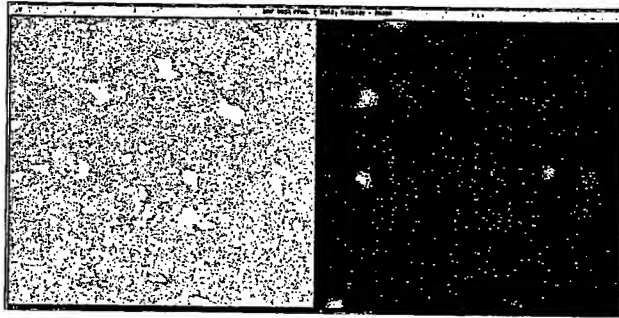
【図 2】



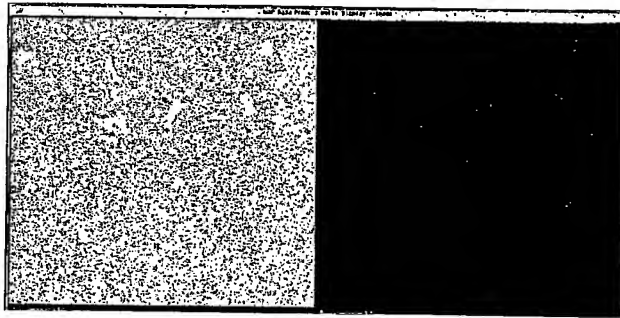
【図 3】



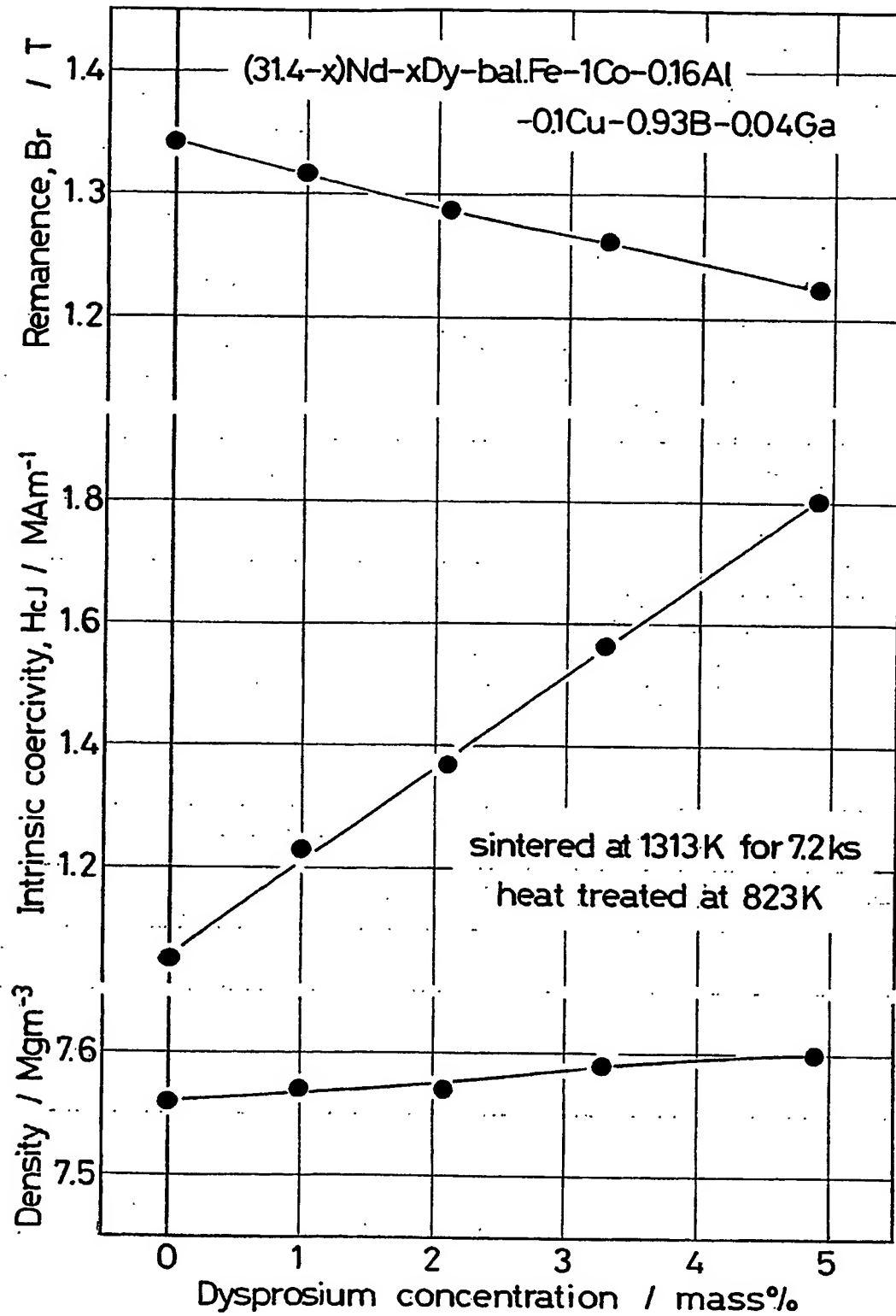
【図 4】



【図 5】



【図6】





【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 B濃度を低下させながら保磁力が十分に高いR-T-B系焼結磁石を提供する。

【解決手段】 本発明のR-T-B系焼結磁石は、R：27.0質量%以上32.0質量%以下（Rは、Nd、Pr、Dy、Tbのうち少なくとも1種であり、NdまたはPrのいずれかが必ず含まれる）、T：63.0質量%以上72.5質量%以下（Tは、Feを必ず含み、Tの50%以下をCoで置換できる）、Ga：0.01質量%以上0.08質量%以下、およびB：0.85質量%以上0.98質量%以下の組成を有する。

【選択図】 図1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 1 8 3 4 1 7 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 1 3 日

[変更理由]

新規登録

住 所

大阪府大阪市中央区北浜 4 丁目 7 番 1 9 号

氏 名

住友特殊金属株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**